

Rec'd PCT/PTO 29 MAR 2005

PCT/JP2004/000256

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

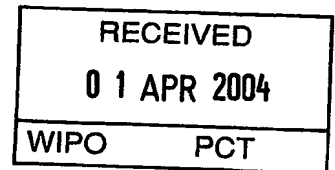
09.02.04

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2003年 1月16日

出 願 番 号
Application Number: 特願2003-008805
[ST. 10/C]: [JP2003-008805]



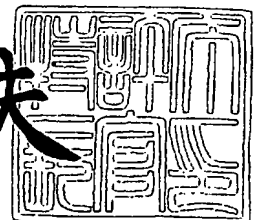
出 願 人
Applicant(s): 愛知製鋼株式会社

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 3月18日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特2004-3021751

【書類名】 特許願

【整理番号】 P000013768

【提出日】 平成15年 1月16日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 H01F 1/02

【発明の名称】 異方性磁石粉末の製造方法

【請求項の数】 5

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県東海市荒尾町ワノ割 1 番地 愛知製鋼株式会社
内

【氏名】 本蔵 義信

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県東海市荒尾町ワノ割 1 番地 愛知製鋼株式会社
内

【氏名】 濱田 典彦

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県東海市荒尾町ワノ割 1 番地 愛知製鋼株式会社
内

【氏名】 三嶋 千里

【特許出願人】

【識別番号】 000116655

【氏名又は名称】 愛知製鋼株式会社

【代表者】 柴田 雄次

【代理人】

【識別番号】 100081776

【弁理士】

【氏名又は名称】 大川 宏

【電話番号】 (052)583-9720

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009438

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 異方性磁石粉末の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 イットリウム (Y) を含む希土類元素 (以下、「R」という。) とホウ素 (B) と鉄 (Fe) とを主成分とする RFeB 系合金を、水素分圧が 10～100 kPa 中の第 1 処理圧力 (以下、「P1」という。) で、温度が 953～1133 K 中の第 1 処理温度 (以下、「T1」という。) となる処理雰囲気中に保持する高温水素化工程と、

該高温水素化工程後の RFeB 系合金を水素分圧が 10～200 kPa 中の第 2 処理圧力 (以下、「P2」という。) に、温度が 1033～1213 K 中の第 2 処理温度 (以下、「T2」という。) で、かつ、 $P2 \geq P1$ 、 $T2 > T1$ あるいは、 $P2 > P1$ 、 $T2 \geq T1$ の条件を満たす組織安定化工程と、

該組織安定化工程後の RFeB 系合金を水素分圧が 0.1～10 kPa 中の第 3 処理圧力 (以下、「P3」という。) で、温度が 1033～1213 K 中の第 3 処理温度 (以下、「T3」という。) となる処理雰囲気中に保持する制御排気工程と、

該制御排気工程後の RFeB 系合金から残留した水素 (H) を除去する強制排気工程と、

を備えることを特徴とする異方性磁石粉末の製造方法。

【請求項 2】 さらに、前記制御排気工程後で前記強制排気工程前に、前記 RFeB 系合金を冷却する冷却工程を備える請求項 1 に記載の異方性磁石粉末の製造方法。

【請求項 3】 さらに、前記高温水素化工程前に、前記 RFeB 系合金を温度が 873 K 以下の水素雰囲気中に保持する低温水素化工程を備える請求項 1 に記載の異方性磁石粉末の製造方法。

【請求項 4】 さらに、前記制御排気工程後または前記強制排気工程後に得られた残留した水素を含む RFeB 系合金若しくは RFeB 系合金へ、ジスプロシウム (Dy)、テルビウム (Tb)、ネオジム (Nd)、プラセオジム (Pr) またはランタン (La) からなる元素 (以下、「R1」という。) を少なくとも一

種以上含有する拡散材料を混合して混合粉末とする混合工程と、混合粉末から残留したHを除去する工程である脱水素工程と、該混合粉末を加熱して該RFeB系合金の表面および内部に該R1を拡散させる拡散熱処理工程と、

を備える請求項1に記載の異方性磁石粉末の製造方法。

【請求項5】前記混合粉末が、水素を含まない場合は、脱水素工程を除くことを特徴とする請求項4に記載の異方性磁石粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、磁気特性に非常に優れた異方性磁石粉末が得られる異方性磁石粉末の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

磁石は、各種モータ等、我々の周囲にある多くの機器で使用されているが、最近の軽薄短小化や機器の高効率化等により、より強力な永久磁石が求められている。この観点から、希土類元素(R)とホウ素(B)と鉄(Fe)とからなるRFeB系磁石(希土類磁石)の開発が従来から盛んに行われてきた。このような希土類磁石の製造方法としては、下記特許文献1、2に記載されている急冷凝固法的一种であるメルトスパン法がある。また、特許文献3、4に記載されているように、基本的に水素化工程と脱水素工程との2工程によって水素化・不均化反応を起させるHDDR法(hydrogenation-disproportionation-desorption-recombination)がある。しかし、これらの方法では、いずれも磁気特性の低い磁石粉末しか得られない。また、磁気特性に優れた異方性磁石粉末の量産には適量し難い製造方法である。

【0003】

このような製造方法とは異なり、非常に優れた磁気特性が得られる異方性磁石粉末の製造方法を本発明者は既に開発している。この製造方法は、得られた磁石粉末の特性が異質であり、上記HDDR法とは工程内容等が大きく異なるため、

上記HDDR法と区別する意味でd-HDDR法と呼ばれている。このd-HDDR法は、温度や水素圧力の異なる工程を複数設け、RFeB系合金と水素との反応速度を緩やかに制御して、均質で磁気特性に優れる異方性磁石粉末が得られる点が特徴である。具体的には、室温でRFeB系合金に水素を十分に吸収させる低温水素化工程と、低水素圧力下で水素化・不均化反応を起こさせる高温水素化工程と、可能な限り高い水素圧力下で水素を緩やかに解離させる第1排気工程と、その後の材料から水素を除去する第2排気工程の4工程から主になるとされていた。各工程の詳細は、下記特許文献5、6や非特許文献1等の開示されている。

【0004】**【特許文献1】**

米国特許4851058号公報

【特許文献2】

米国特許5411608号公報

【特許文献3】

特開平2-4901号公報

【特許文献4】

特開平11-31610号公報

【特許文献5】

特許3250551号公報

【特許文献6】

特開2002-93610号公報

【非特許文献1】

日本応用磁気学会誌、24（2000）、p. 407

【0005】**【発明が解決しようとする課題】**

上記d-HDDR法によれば、優れた磁気特性の異方性磁石粉末が得られるが、自動車の駆動モータ用磁石等ではさらに高い磁気特性が求められている。また、生産量が増えると、RFeB系合金と水素との反応の際に生じる発熱量または

吸熱量も増え、処理雰囲気の温度が局所的に変化し易くなるが、従来の製造方法では、その温度変化を必ずしも巧く抑制しきれず、高磁気特性の異方性磁石粉末を安定的に生産することが容易ではなかった。

【0006】

本発明は、このような事情に鑑みてなされたものである。つまり、従来を凌ぐ程に優れた磁気特性をもつ異方性磁石粉末の製造方法を提供することを目的とする。特に、その高磁気特性の異方性磁石粉末を量産時でも安定して製造可能な製造方法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段および発明の効果】

本発明者は、この課題を解決すべく鋭意研究し、試行錯誤を繰り返すとともに各種系統的实验を重ねた結果、従来、一定温度、一定水素分圧で行われていた高温水素化処理工程後に、制御排気する工程を、高温水素化処理工程後において、温度、水素分圧の少なくとも一方を増加させる組織安定化工程を行い、その後、従来の制御排気工程を行うことにより、従来を凌ぐ優れた磁気特性をもつ異方性磁石粉末が得られることを新たに見出した。また、これが量産に非常に適していることをも確認し、本発明を完成させるに至った。

【0008】

本発明の異方性磁石粉末の製造方法は、イットリウム（Y）を含む希土類元素（以下、「R」という。）とホウ素（B）と鉄（Fe）とを主成分とする RFeB 系合金を、水素分圧が 10～100 kPa 中の第 1 処理圧力（以下、「P1」という。）で、温度が 953～1133 K 中の第 1 処理温度（以下、「T1」という。）となる処理雰囲気に保持する高温水素化工程と、

該高温水素化工程後の RFeB 系合金を水素分圧が 10～200 kPa 中の第 2 処理圧力（以下、「P2」という。）に、温度が 1033～1213 K 中の第 2 処理温度（以下、「T2」という。）で、かつ、 $P2 \geq P1$ 、 $T2 > T1$ あるいは、 $P2 > P1$ 、 $T2 \geq T1$ の条件を満たす組織安定化工程と、

該組織安定化工程後の RFeB 系合金を水素分圧が 0.1～10 kPa 中の第 3 処理圧力（以下、「P3」という。）で、温度が 1033～1213 K 中の第

3 処理温度（以下、「T3」という。）となる処理雰囲気中に保持する制御排気工程と、

該制御排気工程後の RFeB 系合金から残留した水素（H）を除去する強制排気工程とを備えることを特徴とする。

【0009】

本発明の製造方法が従来の d-HDDR 法と最も異なるのは、高温水素化工程と制御排気工程の両工程間に組織安定化工程を新設した点である。その組織安定化工程は、高温水素化処理工程の処理温度、水素分圧の少なくとも一方を増加させたことが大きな特徴である。

このように、高温水素化工程後、温度、水素分圧の少なくとも一方を増加させる組織安定化工程を施し、さらに制御排気工程を行うことで、従来になく磁気特性に優れた磁石粉末が得られた。さらにこの製造方法によると、その非常に高い磁気特性の異方性磁石粉末が安定して量産できることも分かった。

【0010】

本発明の製造方法がこのように優れた効果を発現する理由は必ずしも明らかではないが、現状、次のように考えられる。

従来の d-HDDR 法は、

- ①低温水素化工程において、次の工程における水素化・不均化反応が緩やかに進むように、水素化・不均化反応以下の温度域で水素圧をかけて水素を十分固溶させる。
- ②その後、高温水素化工程において、水素化・不均化反応をさせるべく、所定の温度で、所定圧力下で水素を吸収されながら反応を進行させる。
- ③その後、制御排気工程において、再結合反応をさせるべく、高温水素化工程と同じ温度で、比較的高い所定圧力下で緩やかに脱水素することにより緩やかに反応を進行させる。
- ④更に、強制排気工程において、残留した水素を抜くべく脱水素処理をして処理を完了するものであり、できる限りゆっくりと三相分解を進行させ、できる限りゆっくりと再結合させるといったものであった。

【0011】

本発明者は、非常に優れた磁気特性を有する磁石粉末の製造方法を開発すべく、各種処理と組織との関係を鋭意研究した。そして従来の d-HDDR 法を再検討した。従来の高温水素化工程では、できる限りゆっくりと水素化・不均化反応を進行させているが、その結果、水素化・不均化反応が十分完了せず、微量ではあるが 2-14-1 相 (R₂Fe₁₄B 相) が残存したり、水素化分解すべき析出物が残存したりして、磁気特性が十分に引き出されていないのではないかと考えた。水素化・不均化反応が完全に完了していないと、再結合反応後、均一な結晶粒を得にくく、例えば、混粒組織になり、iHc の低下、磁気カーブにおける角形性の低下となり、ひいては (BH)_{max} の低下を生じる。

【0012】

一般に、化学反応は反応初期の反応は速いが、次第にその速度が落ちるので、長時間保持しないと反応が完結しないと言われている。よって、反応が終了に近づけば近づく程、その反応は進行しにくくなる。上記の反応速度の鈍化を無視して、単純に高温水素化工程の時間を長くして、水素化・不均化反応を完了させようとしたところ、水素化・不均化反応は完了するものの、熱処理時間が長すぎるため、組織劣化、例えば組織の粗大化等が生じて、磁気特性が低下してしまっていた。

【0013】

そこで、本発明者は、水素化・不均化反応を組織の粗大化を伴わずに達成するために、水素化・不均化反応の開始時には、できる限りゆっくりと反応させつつ、さらに、反応の終了段階時には反応が鈍化するため、その反応を早めることで水素化・不均化反応を速やかに完了させることが有効であると着想した。

【0014】

一方、水素化・不均化反応は、水素分圧と温度の両方で制御できるユニークな反応である。本発明者は、この特徴を生かして、この水素分圧や処理温度を制御することで、反応を高速化する手段を検討した。その結果、水素分圧を増加させると、水素化・不均化反応の駆動力が増加し、反応が速やかに完了すると思われる。また、処理温度を増加させても、水素分圧の増加時と同様に、反応が速やかに完了すると思われる。

【0015】

以上により、水素化・不均化反応の末期に、少なくとも水素圧力もしくは処理温度を増加させれば、水素化・不均化反応を速やかに完了させることができると思われる。本発明は、組織安定化工程により、従来の問題点を解決したため、従来の高温水素化工程と制御排気工程の処理温度の処理温度範囲を、それぞれ独立に広くとることが可能である。例えば、従来の d-HDDR 処理の場合、1033～1133 K の温度範囲であり、本発明の処理温度範囲はそれぞれその 1.8 倍となり、処理温度が広がる。その効果として、処理量が増えた場合には、急激な発熱を伴う高温水素化工程、急激な吸熱を伴う制御排気工程を適切な温度範囲で行うことが可能となり、十分な特性が得られる。さらには、高温水素化工程の処理温度を適切な温度範囲の低温側で、制御排気工程の処理温度を適切な温度範囲の高温側で処理することで、さらに処理量をふやしても、適切な温度範囲内で処理が可能である。

【0016】

これにより、高温水素化工程は水素化・不均化反応に好適な温度域内で、制御排気工程は再結合反応に好適な温度域内で安定してなされ、工程中の温度管理も非常に容易となる。そして、Br および iHc の両方に優れ、ひいては (BH) max に優れた高磁気特性の異方性磁石粉末が量産時でも安定して得られるようになる。

【0017】

【発明の実施の形態】

実施形態を挙げて、本発明を詳細に説明する。

(1) RFeB 系合金

RFeB 系合金は、Y を含む希土類元素 (R) と B と Fe とを主成分とするものである。代表的な RFeB 系合金は、R₂Fe₁₄B を主相とするインゴットやそれを粉砕した粗粉末または微粉末である。

R は、Y を含む希土類元素であるが、R は 1 種類の元素に限らず、複数種類の希土類元素を組合わせたり、主となる元素の一部を他の元素で置換等したのもも良い。

【0018】

このようなRは、スカンジウム (Sc)、イットリウム (Y)、ランタノイドからなる。もっとも、磁気特性に優れる元素として、Rが、Y、ランタン (La)、セリウム (Ce)、プラセオジム (Pr)、ネオジム (Nd)、サマリウム (Sm)、ガドリニウム (Gd)、テルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm) およびルテチウム (Lu) の少なくとも1種以上からなると好適である。特に、コスト及び磁気特性の観点から、RがPr、NdおよびDyの一種以上からなると好ましい。

【0019】

また、RFeB系合金は、鉄を主成分とし、全体を100原子% (at%) としたときに11~16 at%のRと5.5~15 at%のBとを含むと好適である。Rが11 at%未満では α Fe相が析出して磁気特性が低下し16 at%を超えるとR₂Fe₁₄B相が減少して磁気特性が低下する。Bが5.5 at%未満では軟磁性のR₂Fe₁₇相が析出して磁気特性が低下し15 at%を超えるとR₂Fe₁₄B相が減少し磁気特性が低下するからである。なお、Bを多くした場合 (10.8 at%以上)、初晶である α -Feの析出が抑制され、磁気特性の低下をもたらす α -Feの析出が抑制される結果、従来、磁気特性の向上には不可欠と考えられていた均質化熱処理工程の省略も可能となる。これにより、磁石粉末等のさらなる低コスト化を図れる。

【0020】

また、RFeB系合金は、さらに、ガリウム (Ga) またはニオブ (Nb) の少なくとも一方を含むと好ましく、両方を含むと一層好ましい。

Gaは、異方性磁石粉末の保磁力 iHcの向上に効果的な元素である。RFeB系合金全体を100 at%としたときに、Gaを0.01~2 at%さらに0.1~0.6 at%含むとより好ましい。0.01 at%未満では十分な効果が得られず、2 at%を超えると逆にiHcの減少を招く。

【0021】

Nbは、残留磁束密度Brの向上に有効な元素である。RFeB系合金全体を100 at%としたときに、Nbを0.01~1 at%さらに0.1~0.4 a

t %含むとより好ましい。0.01 at %未満では十分な効果が得られず、1 at %を超えると、高温水素化工程における水素化・不均化反応が鈍化する。なお、GaおよびNbを複合添加すると、異方性磁石粉末の $i H c$ および異方化率の両方の向上を図れ、その最大エネルギー積 $(BH)_{max}$ を増加させることができる。

【0022】

RFeB系合金は、Coを含有しても良い。Coは、異方性磁石粉末のキュリー点を高め、耐熱性向上に有効な元素である。RFeB系合金全体を100 at %としたときに、Coを0.1~20 at %以下さらに1~6 at %含むとより好ましい。少な過ぎると効果がないが、Coは高価であるため含有量が増えるとコスト高となり好ましくない。

【0023】

その他、RFeB系合金は、Ti、V、Zr、Ni、Cu、Al、Si、Cr、Mn、Zn、Mo、Hf、W、Ta、Snのうち少なくとも1種以上を含有しても良い。これらの元素は、保磁力の向上や磁化曲線の角形性に効果があり、RFeB系合金全体を100 at %としたときに、合計で3 at %以下とすることが好ましい。少な過ぎると効果がないが、多すぎると、析出相などが現れて保磁力の低下等を招く。

【0024】

さらに、RFeB系合金は、前記Rとは別に、Laを0.001~1.0 at %含有していると好適である。これにより、異方性磁石粉末やそれからなる硬質磁石（例えば、ボンド磁石）の経年劣化を抑制できる。何故なら、Laは希土類元素（R. E.）中で最も酸化電位の大きな元素である。このため、Laがいわゆる酸素ゲッタとして作用し、前記R（Nd、Dy等）よりもLaが選択的に（優先的に）酸化され、結果的にLaを含有した磁石粉末や硬質磁石の酸化が抑制される。このLaに替えてDy、Tb、Nd、Pr等の使用も考え得るが、酸化抑制効果およびコストの観点から、Laがより好ましい。なお、このような意図でLaを含有させる場合は、RFeB系合金中のRはLa以外の希土類元素となる。

【0025】

上記Laによる耐蝕性向上効果は、Laが不可避不純物のレベルを越える微量程度から得られる。Laの不可避不純物レベル量が0.001at%未満であるところ、La量の下限は0.001at%さらには0.01at%、0.05at%または0.1at%であれば良い。一方、Laが1.0at%を超えると、iHcの低下を招き好ましくない。そこでLa量が0.01～0.7at%であると一層好ましい。

【0026】

なお、いうまでもないが、RFeB系合金は不可避不純物を含み、その組成はFeでバランスされる。

RFeB系合金は、例えば、種々の溶解法（高周波溶解法、アーク溶解法等）により溶解、鑄造したインゴットやストリップキャスト法で製作した原料を用いることができる。また、RFeB系合金は、インゴットやストリップ等を粉碎した粉末であると、d-HDDR処理が均一に進行して好ましい。この粉碎には、一般的な水素粉碎や機械粉碎等を用いることができる。

【0027】

(2) d-HDDR処理

本発明の製造方法では、高温水素化工程、組織安定化工程、制御排気工程および強制排気工程の4工程を必須工程としている。もっとも、これらの工程は連続になされる必要はない。さらに、高温水素化工程前の低温水素化工程や制御排気工程後の冷却工程を備えると、量産性も考慮すると好ましい。また、異方性磁石粉末の磁気特性向上やその異方性磁石粉末を硬質磁石（ボンド磁石等）にした際の耐熱性、耐食性等の向上を図って硬質磁石の用途を拡大する観点から、拡散熱処理工程等を行うのが好ましい。以下、これらの各工程について説明する。

【0028】

①低温水素化工程

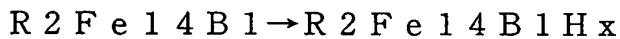
低温水素化工程は、高温水素化工程前に、RFeB系合金を温度が873K以下の水素雰囲気中に保持する工程である。本工程により、水素化・不均化反応を生じない低温域で、RFeB系合金に水素を予め十分に吸蔵させて、高温水素化

工程での水素化・不均化反応の速度制御を容易にすることができる。ただし、R F e B系合金への水素吸蔵は、高温水素化工程で兼ねることも可能なため、本発明の製造方法では、本工程を必須工程としていない。勿論、大量のR F e B系合金を処理し、高磁気特性の異方性磁石粉末を安定的に量産することを考えれば、本工程を設けるのが好ましいことはいうまでもない。

本工程は、水素化・不均化反応を生じない温度域で行われるため、以下の反応が主に生じていると考えられる。

【0029】

【化1】



つまり、水素は、R F e B系合金の格子間あるいは結晶粒界に侵入するだけであり、本工程中では基本的に相変態を生じない。

【0030】

原料合金の組成にもよるが、通常、873～1033 Kで水素化・不均化反応を生じ始めるところ、本工程中の温度を前記873 Kを超えて設定すれば、部分的に組織変態を起して組織が不均一となる。これは、異方性磁石粉末の磁気特性を著しく低下させる要因となり好ましくない。従って、本工程は873 K以下の温度、さらにいえば、室温～573 K程度の温度域で行われれると良い。低温水素化工程中の水素圧力（分圧）は特に拘らないが、例えば、30～100 k P a とすると好適である。水素圧力を30 k P a 以上とすることでR F e B系合金への水素吸蔵に要する時間を短縮でき、100 k P a 以内とすることで経済的に水素吸蔵を行い得る。なお、処理雰囲気は、水素ガスのみならず、例えば、水素ガスと不活性ガスとの混合ガス等で構成されても良い。重要なのは水素分圧であり、これは以下の工程でも同様である。

【0031】

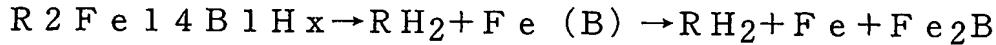
②高温水素化工程

高温水素化工程は、R F e B系合金を水素分力が10～100 k P a で温度が953～1133 K内の第1処理温度（T1）である処理雰囲気に保持する工程である。本工程で、水素を吸蔵したR F e B系合金の組織は、本工程により三相

分解 (Fe 相、RH₂ 相、Fe₂B 相) される。この際、次の水素化・不均化反応が主に生じていると考えられる。

【0032】

【化2】



すなわち、先ず、水素を吸蔵した RFeB 系合金は、Fe と R の水素化物 (RH₂) に分解されて層状のラメラ組織を形成する。この Fe は B を過飽和に固溶させた状態にあると考えられる。そして、そのラメラ組織は、一方向にのみ歪みが導入されたものとなっており、この歪みに沿った形で、Fe 中に過飽和に固溶していた B が正方晶の Fe₂B として一方向に析出すると考えられる。

【0033】

ここで、上記反応速度が大きいと、歪みが一方向に配向したラメラ組織は形成されず、析出してくる Fe₂B の方位もランダムとなってしまふ。つまり、異方化率が低下して Br も低下する。従って、高磁気特性の異方性磁石粉末を得るには、上記反応をできる限り緩やかに進行させることが好ましい。この反応速度を緩やかに行うために、本工程では水素分圧の上限を 100 kPa に抑制している。但し、水素分圧があまりにも小さいと、反応が起らなかったり、多量の未変態組織が残存して保磁力の低下を招くため好ましくないため、その下限を 10 kPa とした。

【0034】

また、本工程中の処理温度が 953 K 未満では上記反応が進行せず、それが 1133 K を超えると過飽和 Fe から Fe₂B が一方向に析出しにくくなったり、反応速度が速いために前記ラメラ組織が形成されにくくなって、結局、Br の低下を招くようになる。そこで、本工程は、上記反応が緩やかに進行する 953 ~ 1133 K 中の第 1 設定温度 (T₁) で行うこととした。なお、好ましい反応速度等の詳細は、前述した特許文献 5 や非特許文献 1 にも記載されている。

【0035】

③組織安定化工程

組織安定化工程は、高温水素化工程後、水素分圧が 10 ~ 200 kPa 中の P

2、温度が1033～1213 K中の T_2 で、かつ、 $P_2 \geq P_1$ 、 $T_2 > T_1$ あるいは、 $P_2 > P_1$ 、 $T_2 \geq T_1$ の条件を満たす工程である。

【0036】

この工程は、前処理である高温水素化工程で残存した2-14-1相や水素化分解すべき析出物を水素化分解するために行われる。水素分圧を10～200 kPaとしたのは、10 kPa未満では、再結合が開始され、その結果、磁気特性が低下する。一方、200 kPaを超えると組織の粗大化し、その結果、磁気特性が低下する。また、処理温度を1033～1213 Kとしたのは、1033 K以下では、残存した2-14-1相や水素化分解すべき析出物の水素化分解が進行せず、磁気特性の低下を招く。一方、上限を1213 Kとしたのは、組織の劣化が起こり、磁気特性の低下を招くからである。

【0037】

また、 $P_2 \geq P_1$ 、 $T_2 > T_1$ あるいは、 $P_2 > P_1$ 、 $T_2 \geq T_1$ の条件を満たすとしたのは、組織安定化工程の水素分圧、処理温度の少なくとも一方が高温水素化工程より高いことを意味し、この条件により低下した水素化・不均化反応を促進させる。その結果、高温水素化工程後の残存した2-14-1相や水素化分解すべき析出物の水素化分解が速やかに進行する。また、組織安定化工程下で、水素化分解が完了するまで保持することが好ましい。ここで、昇温過程や昇圧過程中に水素化分解が完了する場合もある。

【0038】

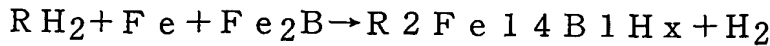
④制御排気工程

制御排気工程は、組織安定化工程後のRFeB系合金を水素分圧が0.1～10 kPa中の第3処理圧力(P_3)で温度が1033～1213 K中の第3処理温度(T_3)である処理雰囲気中に保持する工程である。

本工程で、前工程である高温水素化工程で生成された三相分解中のRH₂相から水素が除去され、Fe₂Bを核として結晶方位の揃ったR₂Fe₁₄B₁相が再結合される。この際、次の再結合反応が主に生じていると考えられる。

【0039】

【化3】



この再結合反応も、できる限りゆっくりと進行するのが好ましい。反応速度が速いと、 $F e_2 B$ を核とした結晶方位にゆれが生じて、再結合した $R_2 F e_{14} B_1$ 相の異方性も低くなり、磁気特性が低下するからである。

そこで、本工程では、第3処理圧力（ P_3 ）を $0.1 \sim 10 \text{ kPa}$ とした。水素分圧を 0.1 kPa 未満とするような急激な排気を行うと、排気口に近い場所の合金材料と遠い場所の合金材料とで排気速度が変わり、再結合反応速度が不均一になり易い。また、この再結合反応は吸熱反応であるため、場所による温度の不均一をも招くことになり、相乗的に、異方性磁石粉末全体の磁気特性低下につながる。一方、水素分圧が 10 kPa を超えると、再結合反応が進まず、逆組織変態が不十分となって、高 $i H_c$ の異方性磁石粉末が得られなくなる。

【0040】

また、本工程中の処理温度が 1033 K 未満では上記反応が進行せず、一方、 1213 K を超えると再結合反応が適切に進行せず、結晶粒の粗大化等によって高 $i H_c$ の異方性磁石粉末が得られなくなる。そこで、本工程は、上記反応が緩やかに進行する $1033 \sim 1213 \text{ K}$ 中の第3処理温度（ T_3 ）で行うこととした。なお、この場合の好ましい反応速度等の詳細も、前述した特許文献5や非特許文献1にも記載されている。

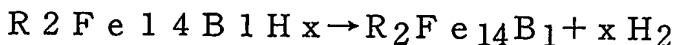
【0041】

⑤強制排気工程

強制排気工程は、制御排気工程後の $R F e B$ 系合金（ $R F e B H_x$ ）から残留した水素（ H ）を除去する工程である。この際、次の反応が主に生じていると考えられる。

【0042】

【化4】



本工程中の処理温度や真空度等は特に限定されないが、上記 T_3 と同程度かそれより低い温度で、 1 Pa 以下まで真空引きするのが好ましい。真空度が弱いと、水素が残存するおそれがあり、磁気特性の低下につながるからである。また、処

理温度が低すぎると排気に長時間を要し、高すぎると結晶粒の粗大化を招き好ましくない。

【0043】

ところで、この強制排気工程は、上記制御排気工程と連続的に行う必要はない。そこで、前記制御排気工程後、本工程前に、合金材料を冷却する冷却工程を入れても良い。この冷却工程は、例えば、制御排気工程後に得られた R F e B 系合金を別の処理炉等に移して、量産時に強制排気工程等をバッチ処理する場合に有効である。また、後述の拡散熱処理を行う場合、この冷却工程を入れることで、R F e B 系合金 (R 2 F e 1 4 B 1 H x) と拡散材料との混合が容易となる。さらに、その R F e B 系合金を所定粒度に粉碎等する際にも、冷却工程を設けると好都合である。

【0044】

冷却工程は、R F e B 系合金の冷却状態を問題とするものではなく、その取扱いを容易とするためであるから、冷却温度、冷却方法、冷却雰囲気等を問わない。また、水素化物は耐酸化性があることから、その R F e B 系合金を室温で大気中に取出すこともできる。なお、当然に、冷却工程後には、R F e B 系合金 (R 2 F e 1 4 B 1 H x) を再び昇温し真空引きする等の強制排気工程を行う。

また、制御排気工程後の R F e B 系合金 (R 2 F e 1 4 B 1 H x) に拡散材料を混合し、その後、拡散熱処理工程を行う場合、その工程後に強制排気工程を一括して行えば効率的である。

【0045】

(3) 拡散熱処理

上記 d-HDDR 処理のみでも、十分に高磁気特性の異方性磁石粉末は得られる。しかし、以下説明する拡散熱処理を行うことで、保磁力、さらには耐食性の向上した異方性磁石粉末を得ることができる。

この拡散熱処理は、基本的に、制御排気工程後の R F e B 系合金 (R 2 F e 1 4 B 1 H x) または強制排気工程後の R F e B 系合金 (異方性磁石粉末) に、D y 等からなる拡散材料を混合して混合粉末とする混合工程と、その混合粉末を加熱して R F e B 系合金の表面および内部に D y 等を拡散させる拡散熱処理工程と

からなる。

【0046】

①拡散材料

拡散材料は、ジスプロシウム (Dy)、テルビウム (Tb)、ネオジム (Nd)、プラセオジム (Pr) またはランタン (La) からなる元素 (以下、「R1」という。) を少なくとも一種以上含有するものであれば良い。例えば、Dy、Tb、Nd、Pr および La からなる元素 (R1) の単体、合金、化合物または水素化物 (R1 材料) の 1 種以上を含むものである。その水素化物には、R1 の単体、合金または化合物の水素化物がある。更には、これらの混合物であってもよい。混合工程前の拡散材料の形態は問わないが、混合工程により混合粉末となり易いものが好ましい。そこで必要に応じて粉末状の拡散材料 (拡散粉末) を用いるのが良く、R1 の RFeB 系合金への均一な拡散も図り易い。

【0047】

R1 材料は、3d 遷移元素および 4d 遷移元素の 1 種以上の遷移元素 (以下、「TM」という。) を含み、拡散熱処理工程で R1 と共に TM が RFeB 系合金の表面および内部に均一に拡散するとより好適である。これにより、さらなる保磁力の向上や永久減磁率の低下を図ることができる。なお、3d 遷移元素は、原子番号 21 (Sc) ~ 原子番号 29 (Cu) であり、4d 遷移元素は、原子番号 39 (Y) ~ 原子番号 47 (Ag) である。特に、8 族の Fe、Co、Ni が磁気特性の向上を図る上で有効である。また、拡散材料は、R1 材料の粉末と、TM の単体、合金、化合物または水素化物 (TM 材料) の粉末とを別々に用意しておきこれらを混合したものでも良い。なお、本明細書でいう化合物には、金属間化合物も含む。また、水素化物には、水素を固溶状態で含んでいるものも含まれる。

【0048】

このような拡散材料は、例えば、ジスプロシウム粉末、ジスプロシウムコバルト粉末、ジスプロシウム鉄粉末、ジスプロシウム水素化物粉末またはジスプロシウムコバルト水素化物粉末、ジスプロシウム鉄水素化物粉末である。特に、R1 が Dy であると、異方性磁石粉末の保磁力が向上し、また、TM が Co であると

、異方性磁石粉末のキュリー点が向上する。さらに、TMにFeが含まれると低コスト化を図れる。

【0049】

特に、拡散材料は、平均粒径が $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ の拡散粉末であるとR1の拡散を図り易く好ましい。平均粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 未満の拡散粉末は製造が困難で、平均粒径が $500 \mu\text{m}$ を超えると、RFeB系合金との均一な混合が困難となる。そして、その平均粒径が $1 \sim 50 \mu\text{m}$ であるとより好ましい。

【0050】

このような拡散粉末は、R1材料を一般的な水素粉碎や乾式若しくは湿式の機械粉碎（ジョークラッシャ、ディスクミル、ボールミル、振動ミル、ジェットミル等）等することで得られる。もっとも、水素粉碎を用いるのが効率的である。この観点からも、拡散粉末として水素化物粉末を使用するのが好ましい。粉碎の際に自動的に水素化物粉末が得られるからである。

【0051】

②拡散熱処理前のRFeB系合金

拡散材料を混合するRFeB系合金は、制御排気工程後または強制排気工程後に得られたものを使用するのが効率的であり、異方性磁石粉末の磁気特性を図る点からも好ましい。さらに、拡散材料として水素化物を使用する場合、制御排気工程後のRFeB系合金（ $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}_1\text{H}_x$ ）を使用すると、拡散熱処理工程後の脱水素行程を強制排気工程で兼用できるので効率的である。

【0052】

そこで、前記混合工程を、前記制御排気工程後に得られたRFeB系合金の水素化物粉末とR1を含む水素化物粉末からなる拡散粉末とを混合して混合粉末とする工程とし、前記強制排気工程を前記拡散熱処理工程後の混合粉末から残留したHを除去する工程とすると好適である。

また、RFeB系合金の形態は問わないが、拡散材料との混合性、拡散性等を考慮して、その平均粒度が $200 \mu\text{m}$ 以下であると好ましい。

【0053】

③混合工程

混合工程は、上記 R F e B 系合金と拡散材料とを混合して混合粉末とする工程である。混合工程には、ヘンシェルミキサ、ロッキングミキサ、ボールミル等を用いることができる。また、拡散熱処理工程の炉に混合機能が付与された回転キルン炉や、回転レトルト炉を用いることが特に好ましい。R F e B 系合金と拡散材料との均一な混合を行うために、各原材料の粉碎、分級等を適宜行うと良い。分級を行うことで、ボンド磁石等の成形が容易にもなる。また、混合工程は、酸化防止雰囲気（例えば、不活性ガス雰囲気や真空雰囲気）で行うことが、異方性磁石粉末の酸化抑制のために好ましい。

【0054】

ところで、拡散材料の混合は、混合粉末全体を 100 質量%としたときに、拡散材料を 0.1～3.0 質量%の割合で行うと好適である。拡散材料の混合割合を適切に調整することで、保磁力、残留磁束密度および角形性のいずれにも優れた高磁気特性を発揮すると共に永久減磁率にも優れた異方性磁石粉末が得られる。

【0055】

④脱水素工程

脱水素工程は、混合粉末から残留した水素を除去する工程である。ここで、R F e B 系合金と拡散材料のうちの少なくともひとつが水素化物である場合は、水素を含有するため、脱水素工程が必須である。

【0056】

前述したように、強制排気工程前の R F e B 系合金に拡散材料を混合し拡散熱処理を行った場合には、本工程を d-HDDR 処理の強制排気工程で兼用させることができる。しかし、強制排気工程後の R F e B 系合金に水素化物からなる拡散材料を混合し拡散熱処理を行った場合には、別途、脱水素工程を行う必要が生じる。この場合の脱水素工程は、例えば、1 Pa 以下、1023～1123 K の真空雰囲気で行えば良い。1 Pa 以下としたのは、1 Pa を超えると水素が残留し、異方性磁石粉末の保磁力低下を招くからである。1023～1123 K としたのは、1023 K 未満では残留水素の除去される速度が低く、1123 K を超えると結晶粒の粗大化を招くからである。

【0057】

⑤拡散熱処理工程

拡散熱処理工程は、混合工程後に得られた混合粉末を加熱して R F e B 系合金の表面および内部に拡散材料の R 1 を拡散させる工程である。

R 1 は酸素ゲッタとしても機能し、異方性磁石粉末やそれを用いた硬質磁石の酸化を抑制する。従って、磁石が高温環境下で使用される場合でも、酸化による性能劣化が有効に抑制、防止されて耐熱性の向上にもなり、その用途も拡大する。

【0058】

この拡散熱処理工程は、酸化防止雰囲気（例えば、真空雰囲気中）で行うのが良く、処理温度は 673～1173 K、特に、制御排気工程の温度 T 3 以下が好ましい。673 K 未満では、R 1 や T M の拡散速度が遅くて効率的ではなく、1173 K や T 3 を超えると、結晶粒の粗大化を招くからである。更に、急冷するのが結晶粒粗大化防止のために好ましい。

【0059】

(4) その他

本発明の製造方法により得られる異方性磁石粉末は、所望形状の焼結磁石やボンド磁石に形成される。特に、その異方性磁石粉末は形状自由度が大きく高温加熱を必要としないボンド磁石に有効である。このボンド磁石は、得られた異方性磁石粉末へ、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、カップリング剤または潤滑剤等を添加混練した後、磁場中で圧縮成形、押出し成形、射出成形等して製造される。

【0060】

【実施例】

実施例を挙げて、本発明について具体的に説明する。

(供試材の製造)

(1) 第 1 実施例

本発明に係る d-HDDR 処理の効果を確認するために、表 1 および表 2 にそれぞれ示す試料 No. 1～17 および試料 No. C1～C26 の供試材を製造した。この際に使用する原料として、4 種類の異なる組成からなる R F e B 系合金

を用意した。これらの各組成を表3に示す。表3の単位はat%で、合金全体を100at%として示した。以降では、表3に示した符号A～Dを用いて、各FeB系合金を合金A、合金Bなどと区別して呼ぶ。

【0061】

これらの合金A～Dは次のようにして製造した。

いずれもの合金も、所望の組成となるように市販の原料を秤量し、それを高周波溶解炉を用いて溶解し、鑄造して100kgのインゴットを製作した。この合金インゴットに、Arガス雰囲気中で1413K×40時間加熱して組織を均質化した（均質化熱処理）。この合金インゴットをさらにジョークラッシュを用いて、平均粒径10mm以下に粗粉碎して、それぞれ組成の異なる合金A～Dを得た。なお、合金Dは、溶解・鑄造後に均質化熱処理を施さず粗粉碎を施した。

【0062】

次に、表1および表2に示すように、供試材毎に、使用する合金の種類や工程内容を変えて、多数の供試材を製造した。各供試材の処理量は、いずれも12.5gとした。各供試材毎に使用する合金を処理炉に入れて、室温×100kPa×1時間の共通した低温水素化工程を施した。続いて、180分の高温水素化工程を施した。この高温水素化工程の温度（T1）および水素分圧は各供試材毎に表1、2に示した。

【0063】

さらに、水素分圧が1kPaの制御排気工程を90分間施した。この制御排気工程の温度（T3）は各供試材毎に表1、2に示した。もっとも、試料No. C1～C16の場合は、高温水素化工程と制御排気工程とを同温度で行ったのでT3=T1である。最後に、制御排気工程と同温度で処理炉内の水素分圧を1Pa以下とする強制排気工程を30分間行った。

【0064】

ところで、試料No. 1～17の場合、上記の高温水素化工程と制御排気工程との間に組織安定工程を設けた。組織安定化工程では、処理温度、水素分圧の少なくとも一方を増加させた。これらの工程パターンを図1、2および3に示す。なお、組織安定工程中の昇温（T1→T2）はいずれも5分間で行ったが、その

後の保持時間は供試材毎に変えた。その詳細は表 1 に示した。

【0065】

さらに、試料 No. 1～17 の内、試料 No. 16、17 では、制御排気工程後に R F e B 系合金の水素化物を冷却炉に移して室温まで冷却する冷却工程を入れた。そして、この冷却工程後に、再度加熱し真空引きする上記強制排気工程を行った。このときの工程パターンを図 4 に示す。

【0066】

試料 No. C1～C16 では、上記組織安定工程を行わず、高温水素化工程から制御排気工程へ直接移行させた。このときの工程パターンを図 5 に示す。

試料 No. C17～C24 では、上記組織安定工程を設けたが、高温水素化工程中の T1、組織安定化工程中の T2、P2 や制御排気工程中の T3 を本発明でいう好適な範囲外とした。

【0067】

試料 No. C25 は、上記組織安定工程を設けずに、制御排気工程開始から 5 分経過後に、処理炉内の温度を T1→T3 へ 5 分間かけて昇温したものである。試料 No. C25 は、上記組織安定工程を設けずに、制御排気工程開始から 15 分経過後に、処理炉内の温度を T1→T3 へ 5 分間かけて昇温したものである。これらの工程パターンを図 6 に示す。

【0068】

(2) 第 2 実施例

上記 d-HDDR 処理に加えて拡散熱処理を行った場合の効果を確認するために、表 4 に示す試料 No. 18～33 の供試材を製造した。この際に使用する拡散材料の原料として、6 種類の異なる組成からなる希土類合金を用意した。それらの各組成を表 5 に示す。表 5 の単位は at % で、合金全体を 100 at % として示した。以降では、表 5 に示した符号 a～f を用いて、各希土類合金を区別する。

【0069】

試料 No. 18～33 の製造に際して、先ず、表 3 に示す合金 B～D のいずれかに、前述した低温水素化工程、高温水素化工程、組織安定工程および制御排気

工程を施し、冷却工程で室温まで冷却して得た R F e B 系合金の水素化物粉末（平均粒径：100 μ m）を用意した。次に、拡散材料として、希土類合金 a ~ f のいずれかの水素化物粉末（平均粒径：5 μ m）を用意した。そして両者を混合した混合粉末に（混合工程）、拡散熱処理工程を行い、最後に強制排気工程を行って、拡散熱処理のなされた試料 N o. 18 ~ 33 の異方性磁石粉末を得た。このときの工程パターンを図 7 に示す。

【0070】

試料 N o. 30 は、拡散材料として上記水素化物に替えて希土類合金 b の粉末（平均粒径：5 μ m）を使用したものである。

試料 N o. 26 は、制御排気工程の R F e B 系合金の水素化物粉末に替えて強制排気工程後の異方性磁石粉末を使用した。従って、制御排気工程後に冷却工程を行わず、続けて強制排気工程を行ったものである。このときの工程パターンを図 8 に示す。

【0071】

試料 N o. 33 は、制御排気工程後、一旦冷却し、さらに真空中で加熱することで強制排気工程を施した異方性磁石粉末を使用した。このときの工程パターンを図 9 に示す。

これら試料 N o. 18 ~ 33 の製造に際して行った d-HDDR 処理および拡散熱処理の各条件は次の通りであり、供試材毎に異なる条件は表 4 に個別的に示した。つまり、R F e B 系合金の処理量：12.5 g、低温水素化工程：室温 x 100 kPa x 1 時間、高温水素化工程：1053 K x 180 分間、組織安定工程：5 分昇温 x 10 分間保持、制御排気工程：1113 K x 1 kPa x 90 分間、強制排気工程：1113 K x 10 Pa 以下 x 30 分間、脱水素・拡散熱処理工程：1073 K x 1 Pa 以下 x 1 時間とした。

【0072】

(3) 第3実施例

上記 d-HDDR 処理および拡散熱処理の量産時の効果を確認するために、さらに、表 6 および表 7 に示す試料 N o. 34、35 および試料 N o. C27、C28 の供試材を製造した。試料 N o. 34 および試料 N o. C27 は d-HDD

R処理のみであり、試料No. 35およびC28はさらに拡散熱処理を施したものである。使用したRFeB系合金はいずれも合金Bで、その処理量は10kgである。また、拡散熱処理工程で使用した拡散材料はいずれも希土類合金bの水素化物粉末であり、混合粉末全体に対して1質量%の割合で混合した。この拡散材料は制御排気工程後のRFeB系合金の水素化物に混合した。その他の各工程の詳細は表6および表7に併せて示した。

【0073】

(供試材の測定)

得られた各磁石粉末の室温での磁気特性 ($(BH)_{max}$ 、 iH_c および B_r) を測定した。測定は、VSMを使用した。測定用試料としては、先ず、磁石粉末を75~106 μm の粒径に分級し、その分級した磁石粉末を用いて反磁場係数が0.2になるようにパラフィンで固化・成形した。1.5 Tの磁場中で配向後4.5 Tで着磁し、VSMでその $(BH)_{max}$ 、 iH_c および B_r を測定した。

【0074】

(評価)

(1) d-HDDR処理について

試料No. 1~17と試料No. C1~C26を対比すると明らかなように、本発明に係る試料No. 1~17の場合、高温水素化工程と制御排気工程の間に組織安定化工程を施すことで、全体的に磁気特性が向上している。例えば、同組成の合金Bからなる異方性磁石粉末の中で、 $(BH)_{max}$ が最大のものを観ると、従来の試料No. C7は360 (kJ/m^3) であるのに対し、試料No. 4は372 (kJ/m^3) に向上している。

【0075】

合金Bの場合について説明したが、他の合金からなる異方性磁石粉末の場合も、同組成のもの同士で比較すると同傾向にある。なお、試料No. 16、17に関しては、制御排気工程と強制排気工程との間に冷却工程を設けた。この工程順でも、優れた磁気特性が得られ、量産化し易いことも確認できた。

【0076】

次に、試料No. C17～C24より、高温水素化工程と制御排気工程の間に組織安定化工程を設けたとしても、好適な温度範囲、好適な水素分圧範囲から外れていれば、好ましい磁気特性は得られない。

また、温度に関しては、試料No. C25およびC26を試料No. 4等と比較すれば解るように、昇温を制御排気工程中で行うという不適当な昇温を行った場合、磁気特性の向上が望めなかった。

【0077】

(2) 拡散熱処理について

試料No. 18～33と試料No. 1～17とを比較すると、全体的に拡散熱処理によって iH_c が増加している。磁石に耐熱性を付与するという点では重要である。また、試料No. 19等と試料No. 27～29とを比べると、拡散材料は0.5～1質量%程度が好ましく、それ以上増えると磁気特性が低下した。また、試料No. 19と試料No. 30とを比べると、拡散材料は水素化物でなくとも十分に効果があることも解った。

【0078】

(3) 量産性について

試料No. 34は試料No. 4をベースにその量産化を図ったものであり、試料No. C27は試料No. C7をベースにその量産化を図ったものである。いずれも、処理量が増加することで磁気特性が多少低下する傾向にあるが、試料No. 34のものは試料No. C27のものよりもその傾向が小さかった。具体的には、試料No. C27は試料No. C7から $(BH)_{max}$ が $42 (kJ/m^3)$ 低下したのに対し、試料No. 34は試料No. 4から $(BH)_{max}$ が $20 (kJ/m^3)$ しか低下しなかった。このように、本発明の製造方法は従来の製造方法に対して、量産段階での磁気特性の低下が $1/2$ 以下となった。従って、本発明の製造方法は工業的にも非常に有効な製造方法であり、試験室レベルに留まらず、量産しても高磁気特性の異方性磁石粉末が得られる。

【0079】

このような傾向は、拡散熱処理を施した試験片No. 35および試料No. C28についても同様であった。

【0080】

【表1】

試料 No.	RFeB系 合金	高温水素化工程		組織安定化工程			制御排気工程		(BH)max (kJ/m ³)	iHc (MA/m)	Br (T)
		処理温度 T1(K)	水素分圧 P1(kPa)	処理温度 T2(K)	保持時間 (分)	水素分圧 P2(kPa)	設定温度 T3(K)	水素分圧 P3(kPa)			
1	A	1053	20	1113	10	20	1113	1	276	0.53	1.36
2	B	1053	30	1073	10	30	1073	1	339	0.83	1.41
3	B	1053	30	1093	10	30	1093	1	360	1.00	1.43
4	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	372	1.11	1.41
5	B	1053	30	1133	10	30	1133	1	368	1.15	1.40
6	B	1053	30	1153	10	30	1153	1	358	1.17	1.37
7	B	1013	30	1113	10	30	1113	1	348	1.10	1.36
8	B	1033	30	1113	10	30	1113	1	366	1.09	1.40
9	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	372	1.09	1.41
10	B	1073	30	1113	10	30	1113	1	368	1.09	1.39
11	B	1053	30	1113	15	30	1113	1	369	1.12	1.40
12	B	1053	30	1113	30	30	1113	1	370	1.14	1.39
13	B	1053	30	1113	10	30	1103	1	370	1.10	1.40
14	B	1053	30	1053	10	50	1053	1	365	1.13	1.39
15	B	1053	30	1113	10	50	1103	1	364	1.13	1.39
16	C	1053	40	1113	10	40	1113	1	382	1.08	1.41
17	D	1053	40	1113	10	40	1113	1	304	1.14	1.27

【0081】

【表2】

試料 No.	RFeB系 合金	高温水素化工程		組織安定化工程			制御排気工程		(BH)max (kJ/m ³)	iHc (MA/m)	Br (T)	備考
		設定温度 T1 (K)	水素分圧 P1 (kPa)	処理温度 T2 (K)	保持時間 (分)	水素分圧 P2 (kPa)	設定温度 T3 (K)	水素分圧 P3 (kPa)				
C1	A	1053	20	—	—	—	T1=T2=T3	1	10	0.03	0.82	組織安定化工程のない 従来d-HDDR処理
C2	A	1093	20	—	—	—	T1=T2=T3	1	262	0.53	1.34	
C3	A	1113	20	—	—	—	T1=T2=T3	1	224	0.48	1.30	
C4	B	1033	30	—	—	—	T1=T2=T3	1	13	0.03	0.96	
C5	B	1053	30	—	—	—	T1=T2=T3	1	294	0.70	1.42	
C6	B	1073	30	—	—	—	T1=T2=T3	1	343	0.95	1.41	
C7	B	1093	30	—	—	—	T1=T2=T3	1	360	1.16	1.39	
C8	B	1113	30	—	—	—	T1=T2=T3	1	318	1.19	1.35	
C9	B	1133	30	—	—	—	T1=T2=T3	1	129	0.89	1.30	
C10	B	1153	30	—	—	—	T1=T2=T3	1	40	0.40	1.22	
C11	C	1053	40	—	—	—	T1=T2=T3	1	326	0.70	1.41	
C12	C	1093	40	—	—	—	T1=T2=T3	1	360	1.17	1.39	
C13	C	1113	40	—	—	—	T1=T2=T3	1	328	1.19	1.36	
C14	D	1033	40	—	—	—	T1=T2=T3	1	6	0.05	0.40	
C15	D	1073	40	—	—	—	T1=T2=T3	1	290	1.14	1.25	
C16	D	1093	40	—	—	—	T1=T2=T3	1	216	1.19	1.09	
C17	B	933	30	1113	10	30	1113	1	18	0.05	0.96	T1が好適温度域より低い
C18	B	1153	30	1193	10	30	1193	1	40	0.16	1.24	T1が好適温度域より高い
C19	B	993	30	1013	10	30	1013	1	9	0.02	0.80	T2, T3が好適温度域より低い
C20	B	1053	30	1233	10	30	1233	1	272	1.08	1.25	T2, T3が好適温度域より高い
C21	B	1113	30	1053	10	30	1053	1	94	0.23	1.21	T1>T2, T3: 好適温度域外
C22	B	1053	30	1053	10	5	1053	1	105	0.29	1.25	P2が好適水素分圧域より低い
C23	B	1053	30	1053	10	300	1053	1	264	1.14	1.25	P2が好適水素分圧域より高い
C24	B	1053	30	1233	10	300	1233	1	220	1.10	1.15	T2, T3が好適温度域より高く、 P2が好適水素分圧域より高い
C25	B	1053	30	—	—	—	1053→1113	1	305	0.72	1.40	制御排気工程5分経過後、 5分で1113Kに昇温し保持
C26	B	1053	30	—	—	—	1053→1113	1	304	0.64	1.40	制御排気工程15分経過後、 5分で1113Kに昇温し保持

【0082】

【表 3】

RFeB系 合金名	合金組成 (at%)					
	Nd	B	Co	Ga	Nb	Fe
A	12.5	6.4	—	—	—	bal.
B	12.5	6.4	—	0.3	0.2	bal.
C	12.5	6.4	5.0	0.3	0.2	bal.
D	12.5	11.5	5.0	0.3	0.2	bal.

【0083】

【表 4】

試料 No.	RF6B系 合金	高温水素化工程			組織安定化工程			制御排気工程			拡散熱処理前の RF6B系合金 の最終工程	拡散材料			(BH)max (kJ/m3)	iHc (MA/m)	Br (T)
		設定温度 T1 (K)	水素分圧 P1 (kPa)	処理温度 T2 (K)	保持時間 (分)	水素分圧 P2 (kPa)	設定温度 T3 (K)	水素分圧 P3 (kPa)	希土類 合金名	粉末状態		粉末重量 (質量%)					
18	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	a	水素化物	0.5	374	1.22	1.41	
19	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	b	水素化物	0.5	373	1.18	1.41	
20	C	1053	40	1113	10	40	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	b	水素化物	0.5	384	1.15	1.42	
21	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	c	水素化物	0.5	372	1.19	1.40	
22	D	1053	40	1113	10	40	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	d	水素化物	1.4	288	1.26	1.24	
23	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	e	水素化物	0.5	374	1.12	1.41	
24	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	f	水素化物	0.5	377	1.26	1.41	
25	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	g	水素化物	0.5	371	1.12	1.41	
26	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	強制排気工程	強制排気工程	b	水素化物	1	369	1.26	1.36	
27	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	b	水素化物	1	366	1.26	1.35	
28	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	b	水素化物	2	337	1.34	1.31	
29	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	b	水素化物	5	281	1.33	1.18	
30	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	制御排気工程	制御排気工程	b	合金	0.5	373	1.18	1.41	
31	B	1053	30	1053	10	50	1053	1	制御排気工程	制御排気工程	b	水素化物	1	360	1.26	1.34	
32	B	1053	30	1113	10	50	1103	1	制御排気工程	制御排気工程	b	水素化物	1	359	1.26	1.34	
33	B	1053	30	1113	10	30	1113	1	強制排気工程 (制御排気工程 →冷却工程 →強制排気工 程)	強制排気工程	b	水素化物	1	367	1.25	1.36	

【0084】

【表5】

希土類 合金名	合金組成 (at%)							
	Dy	Nd	Tb	Pr	La	Fe	Ni	Co
a	58	-	-	-	-	42	-	-
b	77	-	-	-	-	-	23	-
c	50	-	-	-	30	-	-	29
d	-	77	-	-	-	-	-	23
e	-	-	77	-	-	-	-	23
f	-	-	-	77	-	-	-	23

【0085】

【表 6】

試料 No.	RF ₆ B系 合金	高温水素化工程		組織安定化工程			制御排気工程		(BH) _{max} (kJ/m ³)	iH _c (MA/m)	Br (T)
		設定温度 T1 (K)	水素分圧 P1 (kPa)	処理温度 T2 (K)	保持時間 (分)	水素分圧 P2 (kPa)	設定温度 T3 (K)	水素分圧 P3 (kPa)			
34	B	1053	32	1113	30	32	1113	1.1	352	1.14	1.39
C27	B	1093	32	なし	なし	なし	T2=T1	1.1	318	1.04	1.35

【0086】

【表 7】

試料 No.	RF ₆ B系 合金	高温水素化工程		組織安定化工程				制御排気工程		拡散熱処理前 の RF ₆ B系合金 の最終工程	拡散材料			(BH)max (kJ/m ³)	iHc (MA/m)	Br (T)
		設定温度 T1 (K)	水素分圧 P1 (kPa)	処理温度 T2 (K)	保持時間 (分)	水素分圧 P2 (kPa)	設定温度 T3 (K)	水素分圧 P3 (kPa)	希土類 合金名		粉末状態	粉末重量 (質量%)				
35	B	1053	32	1113	30	32	1113	1.1		制御排気工程	b	水素化物	1	350	1.22	1.38
C28	B	1093	32	なし	なし	なし	T2=T1	1.1		制御排気工程	b	水素化物	1	318	1.11	1.34

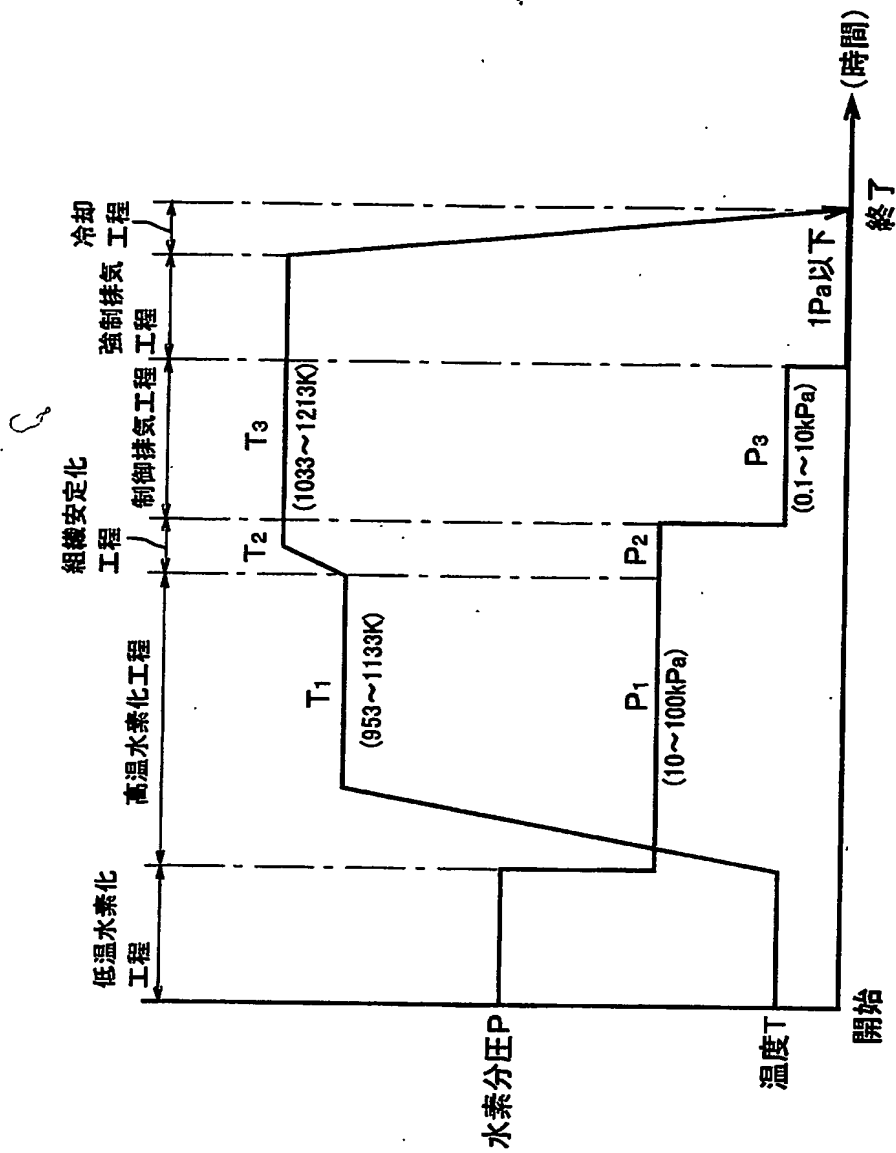
【図面の簡単な説明】

- 【図 1】 各工程の処理内容を模式的に示した第 1 工程パターン図である。
- 【図 2】 各工程の処理内容を模式的に示した第 2 工程パターン図である。
- 【図 3】 各工程の処理内容を模式的に示した第 3 工程パターン図である。
- 【図 4】 各工程の処理内容を模式的に示した第 4 工程パターン図である。
- 【図 5】 各工程の処理内容を模式的に示した第 5 工程パターン図である。
- 【図 6】 各工程の処理内容を模式的に示した第 6 工程パターン図である。
- 【図 7】 各工程の処理内容を模式的に示した第 7 工程パターン図である。
- 【図 8】 各工程の処理内容を模式的に示した第 8 工程パターン図である。
- 【図 9】 各工程の処理内容を模式的に示した第 9 工程パターン図である。

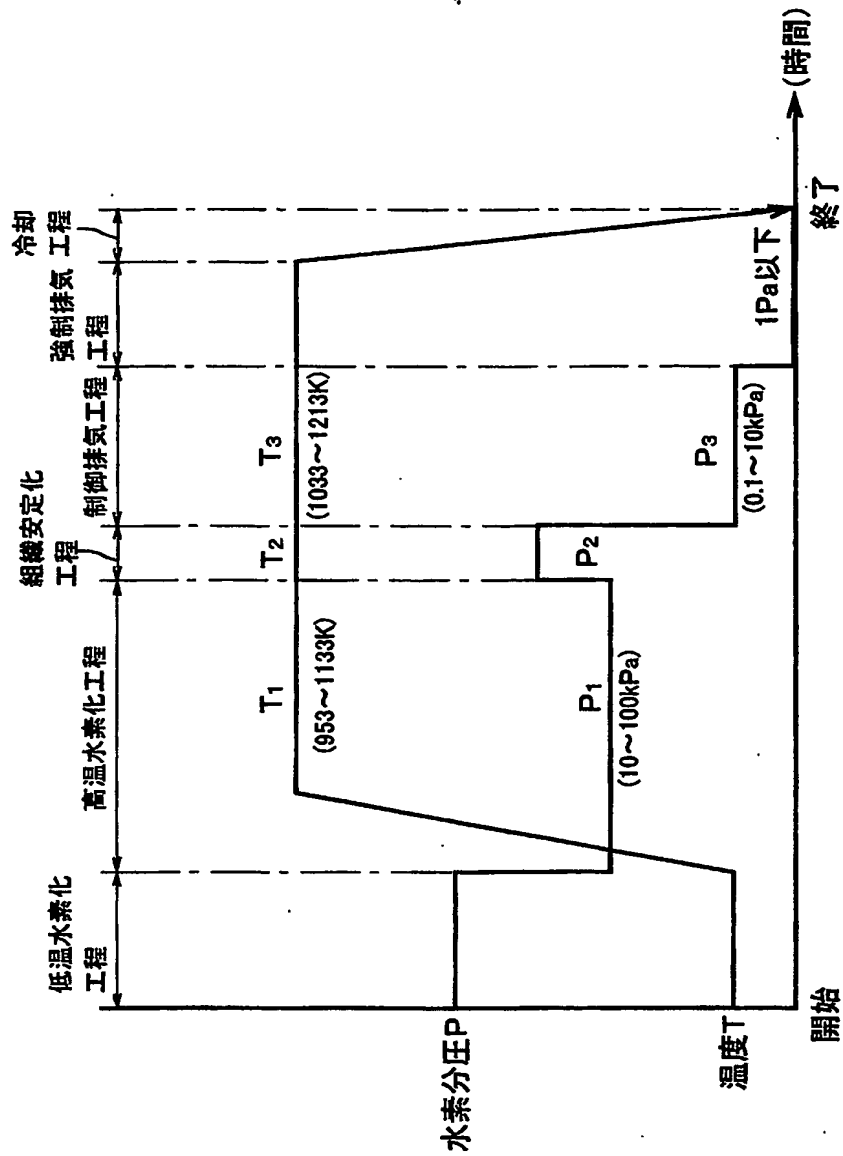
【書類名】

図面

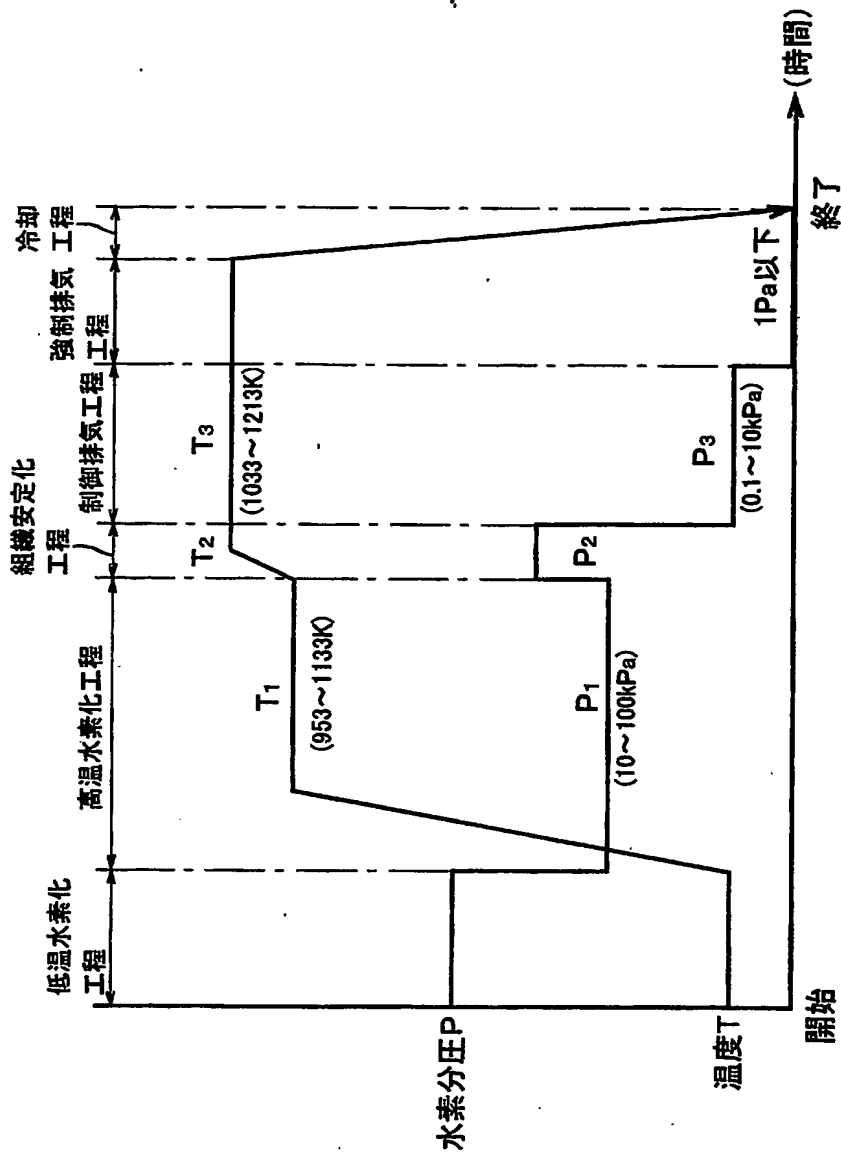
【図 1】



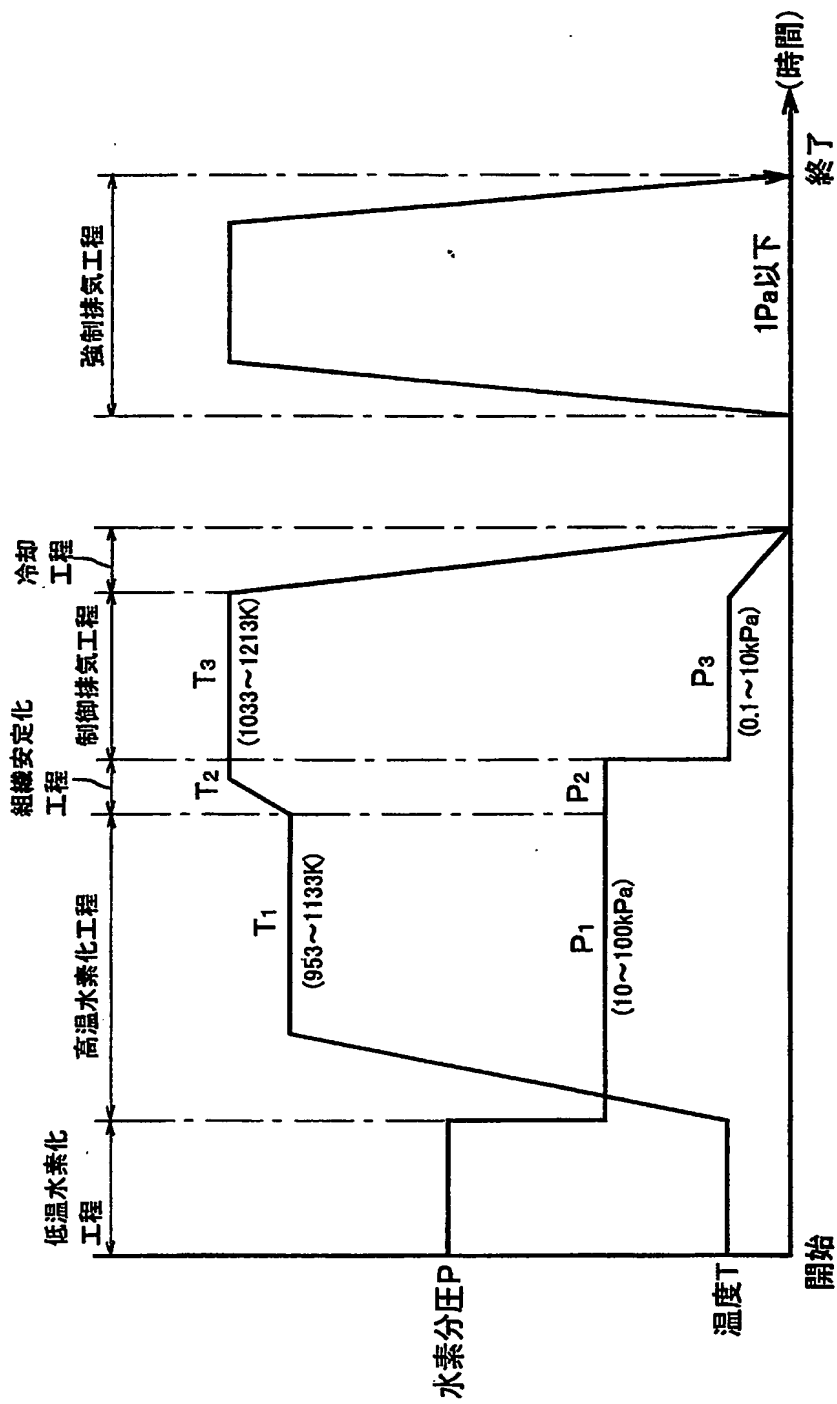
【図 2】



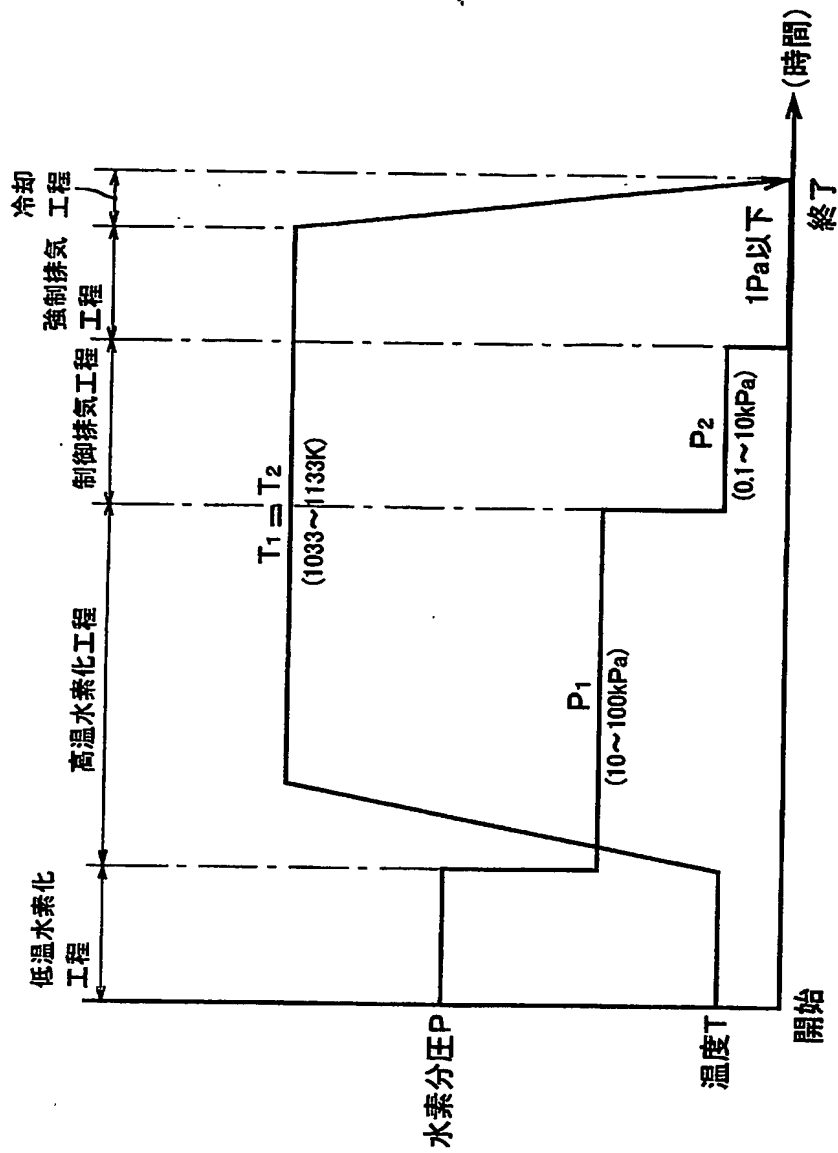
【図 3】



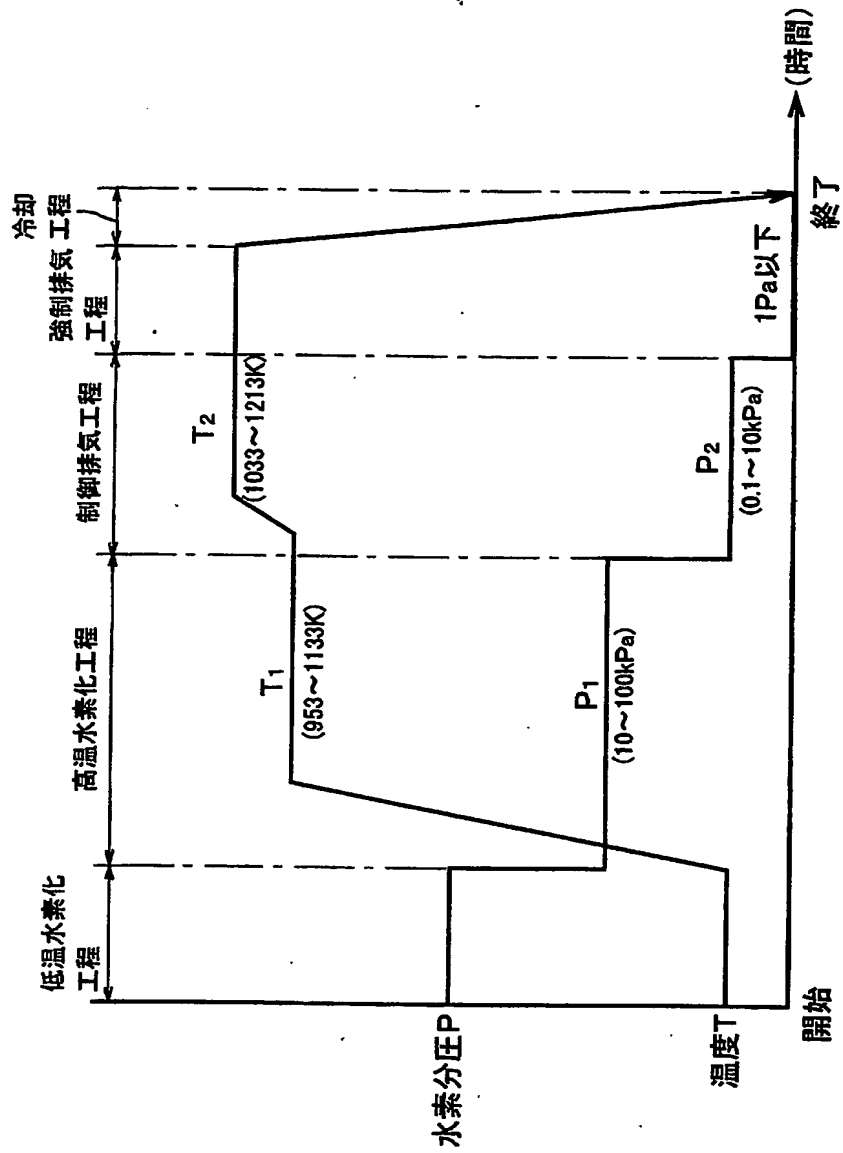
【図 4】



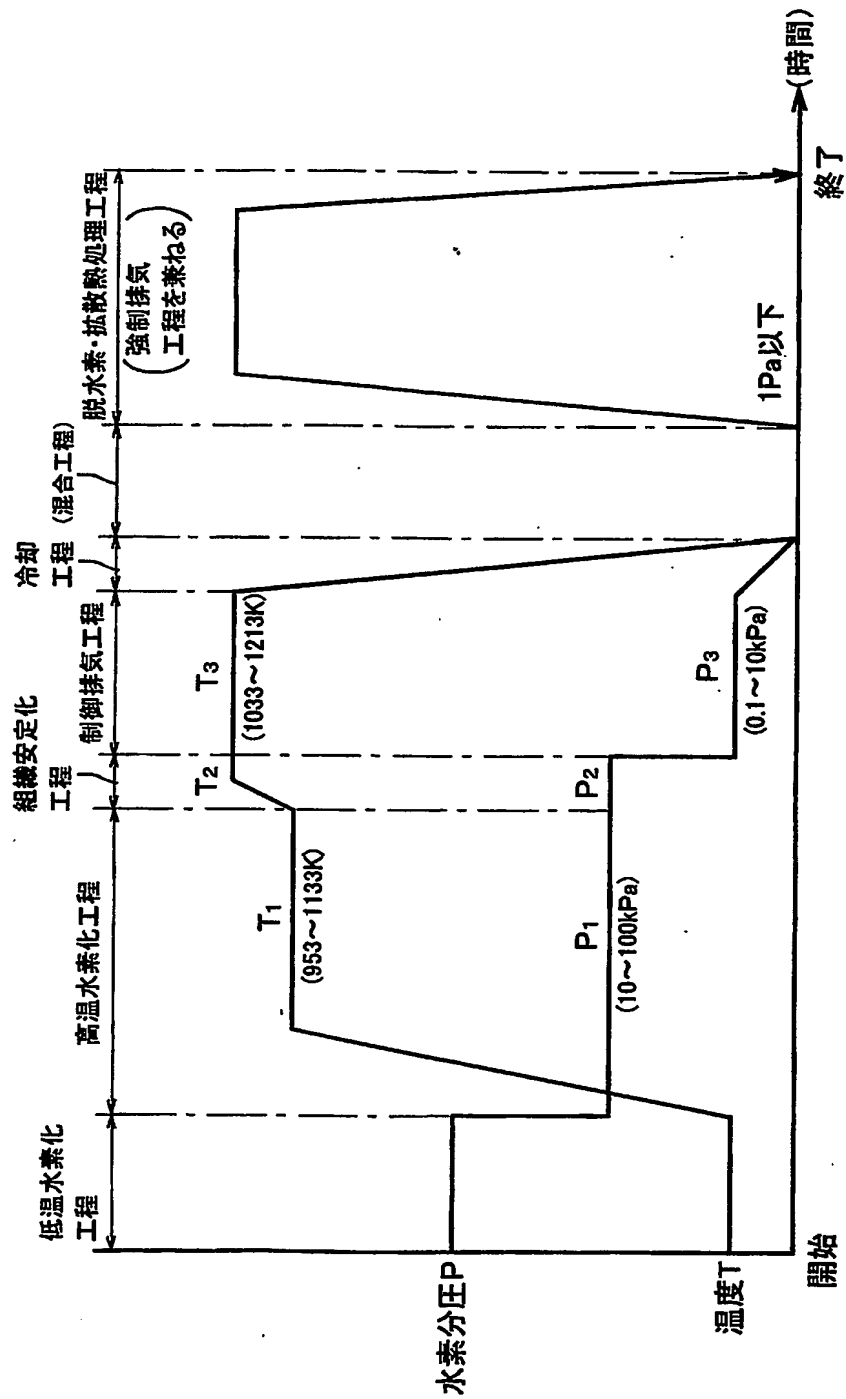
【図 5】



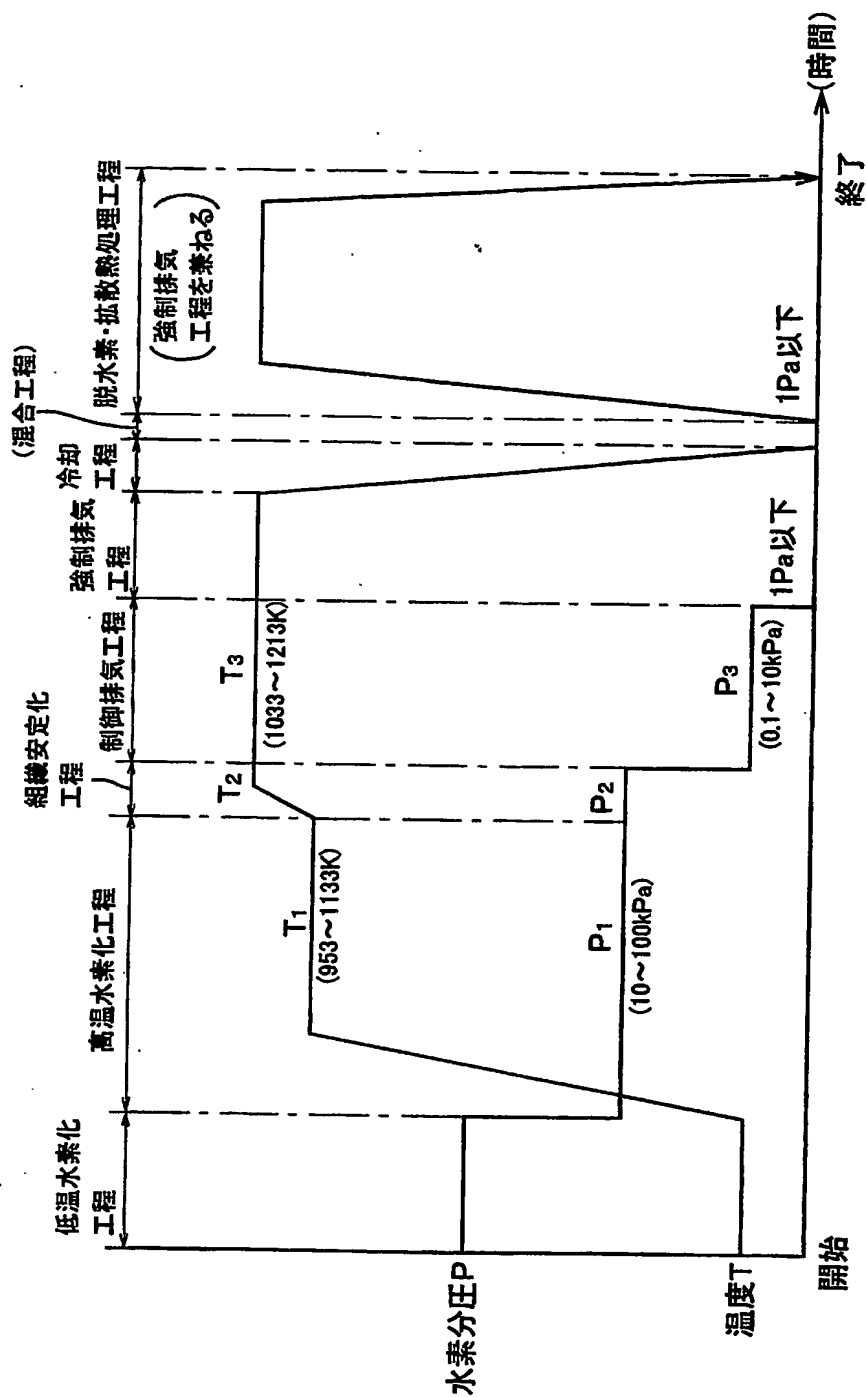
【図 6】



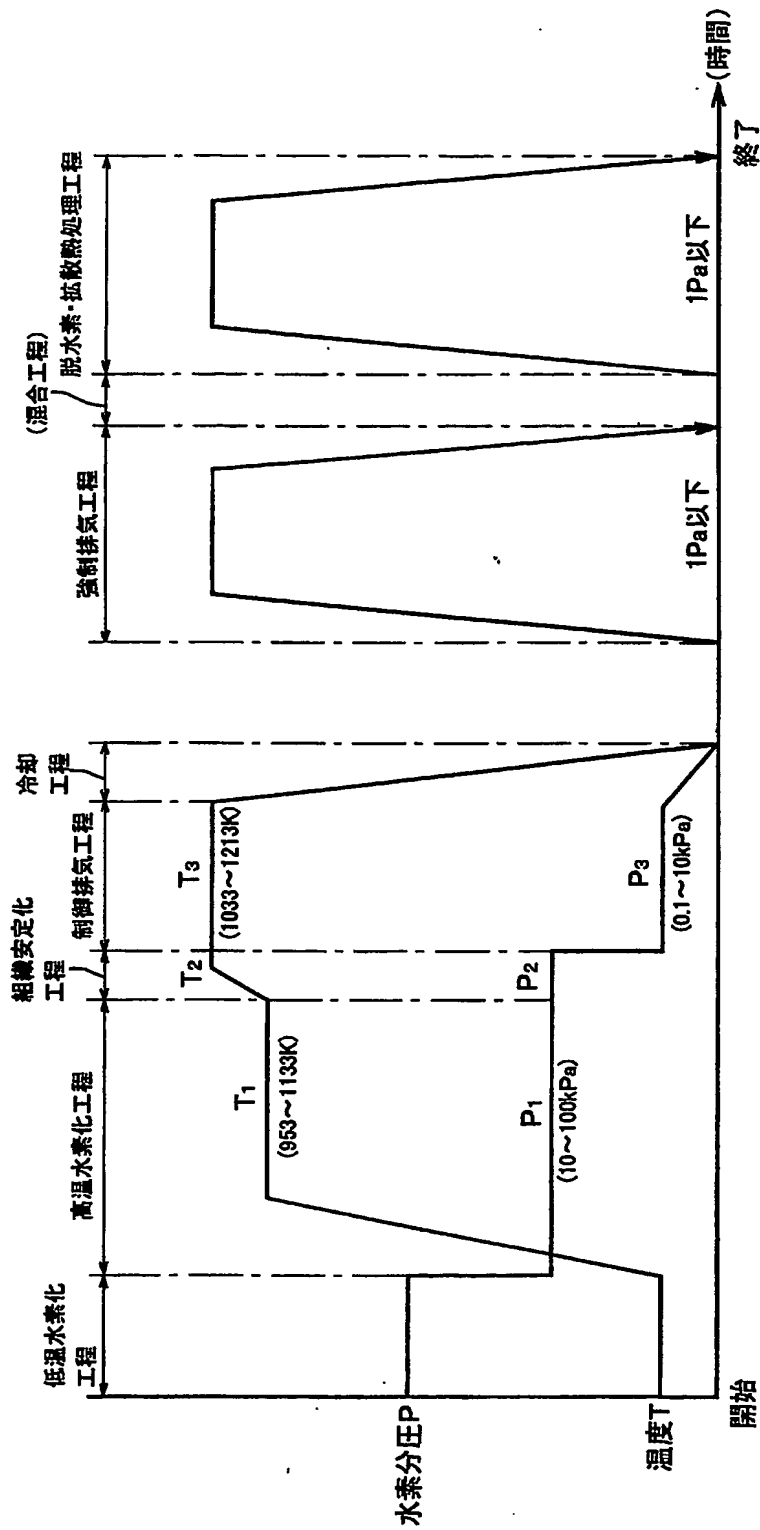
【図7】



【図 8】



【図 9】



【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 高磁気特性の異方性磁石粉末を安定して得られる製造方法を提供する。

【解決手段】 本発明の製造方法によると、Yを含む希土類元素（R）とBとFeとを主成分とするRFeB系合金を、水素分圧が10～100kPa中の第1処理圧力（P1）で、温度が953～1133K中の第1処理温度（T1）となる処理雰囲気中に保持する高温水素化工程と、高温水素化工程後のRFeB系合金を水素分圧が10～200kPa中の第2処理圧力（P2）に、温度が1033～1213K中の第2処理温度（T2）で $P2 \geq P1$ 、 $T2 > T1$ あるいは $P2 > P1$ 、 $T2 \geq T1$ の条件を満たす組織安定化工程と、組織安定化工程後のRFeB系合金を水素分圧が0.1～10kPa中の第3処理圧力（P3）で、温度が1033～1213K中の第3処理温度（T3）となる処理雰囲気中に保持する制御排気工程と、制御排気工程後のRFeB系合金から残留した水素（H）を除去する強制排気工程とを行うことで、異方性磁石粉末の磁気特性を向上させることができる。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000116655]

1. 変更年月日
[変更理由]
住 所
氏 名

1990年 9月 3日
新規登録
愛知県東海市荒尾町ワノ割1番地
愛知製鋼株式会社